

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## Fluid/gas reactor for hydrogen peroxide production with reaction passages formed by a plate stack of closely defined dimensions.

Patent Number: DE19841843

Publication date: 2000-03-30

Inventor(s): EICKHOFF HUBERTUS (DE); SCHUETTE RUEDIGER (DE)

Applicant(s): DEGUSSA (DE)

Requested Patent: DE19841843

Application Number: DE19981041843 19980912

Priority Number(s): DE19981041843 19980912

IPC Classification: B01J10/00 ; B01J8/00

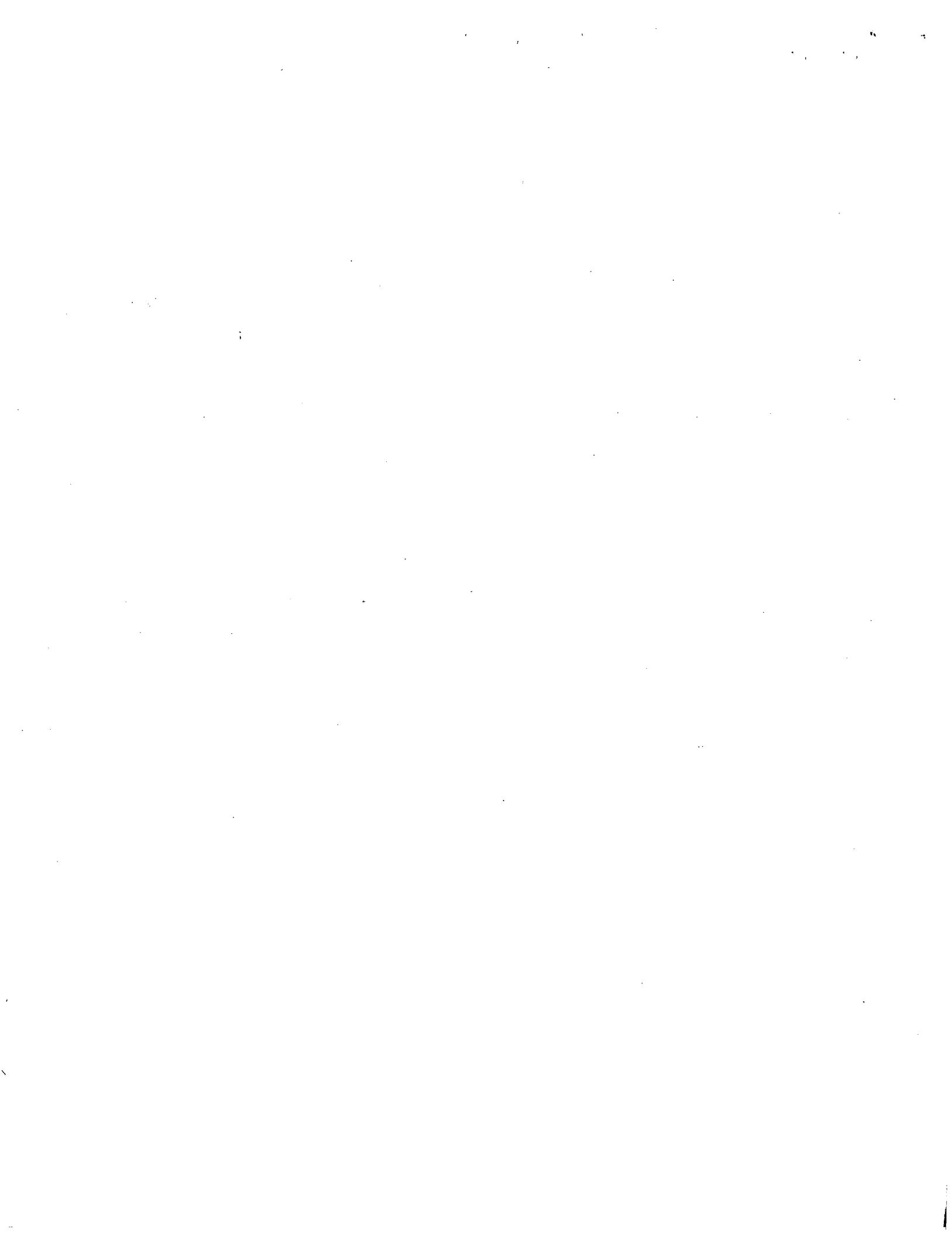
EC Classification: B01J19/32, B01J8/34, B01J19/24R4, C01B15/023

Equivalents:

### Abstract

Fluid/gas reactor for hydrogen peroxide production with reaction passages formed by a plate stack of closely defined dimensions. The reactor is divided into two sections - reaction (5) and heat-exchange (6). Each section contains a plate stack but the stacks are disposed at right angles to each other. An alternative design, where reaction channels and heat-exchange channels are integrated in one stack, is shown. The preferred dimensions of the stack are that the width 's' of the reaction channel is between 10 to 50 mm and that the ratio of the total width of the stack 'b' to 's' is between 10 and 50. More than one reactor would be used in the process - at least one for hydrogenation and one for oxidation. In the anthraquinone process, for which this reactor is specially designed, a catalyst is suspended in the liquid in both stages of the process. Reactions are carried out in parallel, in-line, streams. The plate stacks could lie loosely in the reactor shell.

Data supplied from the esp@cenet database - 12





⑯ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑯ **Offenlegungsschrift**  
⑯ **DE 198 41 843 A 1**

⑯ Int. Cl.<sup>7</sup>:  
**B 01 J 10/00**  
B 01 J 8/00

⑯ Aktenzeichen: 198 41 843.4  
⑯ Anmeldetag: 12. 9. 1998  
⑯ Offenlegungstag: 30. 3. 2000

⑯ Anmelder:  
Degussa-Hüls AG, 60311 Frankfurt, DE

⑯ Erfinder:  
Schütte, Rüdiger, Dr., 63755 Alzenau, DE; Eickhoff, Hubertus, 63755 Alzenau, DE

⑯ Entgegenhaltungen:  
DE-AS 10 67 783  
DE-AS 10 55 501  
DE 195 36 971 A1  
GB 6 20 129  
EP 01 02 934 B1  
EP 06 72 617 A1

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑯ Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen und Durchflußreaktor hierfür

⑯ Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen in einem mehrere parallel nebeneinander angeordnete, in Strömungsrichtung offene Reaktorkammern aufweisenden Durchflußreaktor. Die Raum-Zeit-Ausbeute lässt sich dadurch erhöhen, daß man einen Reaktor mit mindestens drei Kammern, deren Verhältnis Kammerbreite  $b$  zur Spaltbreite  $s$  im Mittel größer als 3 ist, verwendet. Vorzugsweise liegt  $s$  im Bereich von 1 bis 100 mm und  $s/b$  im Bereich von 5 bis 100. Der erfindungsgemäße Durchflußreaktor mit den mindestens drei Reaktorkammern und dem genannten Verhältnis  $s/b$  ist vorzugsweise rohrförmig und enthält eine oder mehrere Plattenstapel.

**DE 198 41 843 A 1**

**DE 198 41 843 A 1**

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen, wobei eine flüssige Phase, welche eine Reaktionskomponente darstellt oder eine solche in gelöster, emulgiert oder suspendierter Form enthält, und eine ein umzusetzendes Gas enthaltende Gasphase in Gegenwart oder Abwesenheit eines Katalysators durch einen mehrere Reaktionskammern aufweisenden Durchflußreaktor geleitet werden. Das Verfahren richtet sich insbesondere auf katalytische Hydrierungen und Oxidationsreaktionen, wie die Herstellung von Wasserstoffperoxid nach dem Anthrachinonverfahren. Ein weiterer Gegenstand richtet sich auf einen mehrere parallel angeordnete Reaktionskammern aufweisenden Durchflußreaktor zur Durchführung des Verfahrens.

Gas-Flüssig-Reaktionen lassen sich mit oder ohne Umlözung des Reaktorinhalts in unterschiedlich ausgebildeten Blasenkolonnen durchführen (siehe Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry, 5th ed., Vol. B4, 276-278 (1992)). Die Raum-Zeit-Ausbeute (RZA) von Gas-Flüssig-Reaktionen der gattungsgemäßen Art hängt in erheblichem Umfang von den Strömungsverhältnissen im Reaktor ab. Eine Steigerung der RZA läßt sich durch eine Intensivierung der Stofftransportvorgänge durch Turbulenzen in der Hauptströmung bewirken. In Schlaufenreaktoren kann dies in gewissem Umfang durch eine Erhöhung der Umlözrate bewirkt werden. Eine bessere Blasenverteilung läßt sich durch Reaktoreinbauten, wie beispielsweise Kolonnenböden und Packungen, einschließlich Statik-Mixer-Elementen, erzielen. Gemäß einer weiteren Ausführungsform dann die Blasensäule auch in einzelne parallel angeordnete Schächte aufgeteilt sein. Ein der vorliegenden Erfindung zugrundeliegendes Verhältnis zwischen Kammerbreite und Spaltbreite läßt sich aus diesem Dokument nicht herleiten.

Eine technisch bedeutsame Anwendung einer Gas-Flüssig-Reaktion ist das Anthrachinonverfahren zur Herstellung von Wasserstoffperoxid (siehe Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry, 5th ed. Vol. A 13, 447-457 (1989)). In der Hydrierstufe dieses Verfahrens wird ein in einer Arbeitslösung gelöster Anthrachinon-Reaktionsträger in Gegenwart eines Suspensionskatalysators mit Wasserstoff in die Anthrahydrochinonform überführt. Gemäß DE-Patentschrift 15 42 089 (= US 3,423,176) erfolgt die Hydrierung im dreiphasigen Reaktionssystem in einem mäanderförmigen Reaktionsraum aus aufeinanderfolgenden, vertikalen, abwechselnd engen und weiten Röhren. Die Erhöhung der Hydriergeschwindigkeit wurde auf die in diesem Reaktor erzielte erhöhte Turbulenz zurückgeführt. Wie jedoch das US-Patent 4,428,923 lehrt, konnte im gleichen Verfahren unter Verwendung eines mäanderförmigen Rohrreaktors aus Röhren gleichen Querschnitts in den auf- und absteigenden Segmenten die Mikroturbulenz und damit die Produktivität, entsprechend der Raum-Zeit-Ausbeute, gesteigert werden.

Der Wirkungsgrad einer der zur Turbulenzzeugung notwendigen Energieübertragung (Energiedissipation) wird durch die Turbulenzstruktur beeinflußt. Die Energie wird über Grob-, Fein- und Mikroturbulenzen kaskadenförmig abgebaut, und die eigentlichen chemischen Prozesse in einem Mehrphasensystem werden hauptsächlich durch Mikroturbulenzen gesteuert.

Anstelle in einem rohrförmigen Reaktor unter Einsatz eines Suspensionskatalysators kann die Hydrierstufe des Anthrachinonverfahrens zur Herstellung von Wasserstoffperoxid gemäß EP-B 0 102 934 auch unter Verwendung eines wabenförmigen Katalysators durchgeführt werden. Dieser Katalysator enthält viele parallele Kanäle, deren Wände mit dem Katalysator beschichtet sind. Die engen Kanäle führen

zwangsweise zu einem erheblichen Druckverlust und, wie in dem US-Patent 5,071,634 festgestellt wird, zu einer schwachen Durchmischung des Wasserstoffs mit der Arbeitslösung, gegebenenfalls auch zu einer Phasentrennung. Nachteilig an katalysatorbeschichteten wabenförmigen Elementen – gleiches gilt auch für katalysatorbeschichtete Statik-Mixer-Elemente – ist, daß sie sich nur schwer und sehr aufwendig, etwa durch Austauschen der Elemente, regenerieren lassen. Ein weiterer Nachteil ist der ungenügende Wärmetransport aus den inneren Bereichen des üblicherweise aus einem keramischen Material hergestellten wabenförmigen Katalysatorträgers nach außen. Die Zonen für die katalytische Reaktion und die Wärmeabfuhr sind damit voneinander getrennt. Dies macht zusätzliche apparative Maßnahmen zur Wärmeabfuhr erforderlich.

Im Anthrachinonprozeß zur  $H_2O_2$ -Herstellung gemäß US-Patent 5,071,634 wird eine mit  $H_2$  beaufschlagte Arbeitslösung durch längliche Statik-Mixer-Zonen mit mehreren mit einem Katalysator beschichteten Ablenkblechen geleitet. Die Statik-Mixer-Zonen gewährleisten zwar eine gute Durchmischung der  $H_2$ -Gasblasen mit der Arbeitslösung und wegen der Verteilung des Flusses auf den gesamten Querschnitt auch einen guten Wärmetransport zur gekühlten Außenwand, jedoch erfordert diese Ausbildung wegen des höheren Druckverlusts einen höheren Energieeinsatz. Zudem lassen sich Statik-Mixer-Elemente dann nicht verwenden, wenn das Verfahren unter Verwendung eines Suspensionskatalysators betrieben werden soll, weil die längs und quer zur Strömungsrichtung angeordneten Ablenkbleche des Statik-Mixers zu einer Katalysatorsenke (Ablagerung) führen.

Im Verfahren der EP-A 0 672 617 wird ein Gemisch aus der Arbeitslösung und Wasserstoff mit relativ hoher Geschwindigkeit von oben nach unten über ein Katalysator geleitet. Gemäß Fig. 2 dieses Dokuments kann der Reaktor vertikale Platten aufweisen, welche aus zwei Netzen mit dazwischen befindlichen Katalysatorpartikeln bestehen. Katalysator und Netze füllen etwa 30% des Reaktorquerschnitts, so daß ein großer Teil des Querschnitts für den Durchfluß der Gas-Flüssig-Dispersion frei bleibt. Die Platten müssen durchlässig sein, so daß ein ständiger Austausch der links und rechts von einer solchen Platte befindlichen Arbeitslösung als Voraussetzung für die Katalysatorreaktion möglich ist. Nachteilig ist, daß im Regelfall Wasserstoff im Überschuß eingesetzt und damit letzterer rezykliert werden muß. Wegen des limitierten Füllgrads an Katalysator steigen das Reaktorvolumen und damit der hold-up an teurer Arbeitslösung an.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen aufzuzeigen, das durch apparative Ausgestaltung des Reaktors zu einer höheren Raum-Zeit-Ausbeute (RZA) führt als unter Verwendung vorbekannter rohrförmiger Durchflußreaktoren. Der Reaktor sollte eine möglichst einfache Bauart aufweisen und zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen in Gegenwart von im flüssigen Medium suspendierten Feststoffen, wie Suspensionskatalysatoren, geeignet sein. Gemäß einer weiteren Aufgabe sollte die RZA des Anthrachinonprozesses zur Herstellung von Wasserstoffperoxid unter Einsatz eines Suspensionskatalysators gegenüber dem Verfahren unter Verwendung vorbekannter mäanderförmiger Rohrreaktoren erhöht werden.

Gefunden wurde ein Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen, wobei eine flüssige Phase, welche eine Reaktionskomponente darstellt oder eine solche in gelöster, emulgiert oder suspendierter Form enthält, und eine ein umzusetzendes Gas enthaltende Gasphase in Gegenwart oder Abwesenheit eines Katalysators durch einen mehrere

parallel nebeneinander angeordnete und für gleiche Strömungsrichtung konzipierte Reaktorkammern aufweisenden Durchflußreaktor geleitet werden, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man einen Durchflußreaktor mit mindestens drei spaltförmigen Reaktorkammern verwendet, wobei das Verhältnis der Breite  $b$  der Reaktorkammern zur Spaltbreite  $s$  im Mittel größer als 3 ist.

Die Unteransprüche richten sich auf bevorzugte Ausführungsformen des Verfahrens und Anwendung desselben zur Herstellung von Wasserstoffperoxid nach dem Anthrachinonprozeß. Zweckmäßigerweise liegt das Verhältnis  $b/s$  des zu verwendenden, besonders bevorzugt rohrförmigen Reaktors im Bereich von 5 bis 100, insbesondere 10 bis 50, und die Spaltbreite  $b$  im Bereich von 1 bis 100 mm, insbesondere 5 bis 50 mm.

Der zur Durchführung des Verfahrens geeignete Durchflußreaktor umfaßt eine rohr- oder behälterförmige Reaktorwand, einen Einlaß zum Zuführen der Reaktionskomponenten, einen Auslaß zum Abführen des umgesetzten Reaktionsgemisches und mehrere parallel nebeneinander angeordnete und für gleiche Strömungsrichtung konzipierte Reaktorkammern und ist dadurch gekennzeichnet, daß er mindestens drei spaltförmige Reaktorkammern aufweist, deren Verhältnis Kammerbreite  $b$  zu Spaltbreite  $s$  im Mittel größer als 3 ist.

In den erfundengemäßen Durchflußreaktoren werden in einfacher Weise Mikroturbulenzen erzeugt, womit die Umsetzung beschleunigt wird. Es ist bekannt, daß die massebezogene Dissipationsleistung (W/kg) mit zunehmendem Makromäßigstab der Großturbulenz (= Abmessung der größten auftretenden Primärturbulenzballen) abnimmt. Durch die erfundengemäße Ausbildung des Reaktors ist es möglich, die Großturbulenzen zu minimieren und die Dissipationsleistung zu erhöhen. Aus der Definition  $d_{gl} = 4 A/U$ , worin  $d_{gl}$  der den hydraulischen Durchmesser in einem runden Rohr entsprechende gleichwertige Durchmesser in einem anders geschnittenen Reaktionsraum ist und  $A$  der Fläche und  $U$  dem Umsang des anderen Reaktionsraumes entsprechen, folgt für rechteckige Querschnitte, wie den erfundengemäßen spaltförmigen Reaktorkammern,  $d_{gl} = 2 \cdot b \cdot s / (b+s)$ , worin  $s$  die Spaltbreite ist, etwa dem Makromäßigstab entspricht und  $b$  die Kammerbreite; für  $s < b$  gilt  $d_{gl} \approx 2s$ .

Diese Gleichung besagt, daß bei den spaltförmigen Reaktorkammern bei gleicher Reynoldszahl wie in runden Rohren nur etwa der halbe Makromäßigstab vorliegt. Damit wird in den spaltförmigen Kanälen gegenüber einem Rohrbündel die gleiche Dissipation bei wesentlich geringerem Druckverlust erreicht. Auf den Druckverlust hat nicht nur die Strömungsgeschwindigkeit einen Einfluß, sondern auch die Wandreibung. Nähert man sich dem laminaren Gebiet, wird der Druckverlust im erfundengemäßen Reaktor weiter vermindert. Es ist überraschend, daß diese Aspekte bisher bei der Konstruktion von Durchflußreaktoren für Gas-Flüssig-Reaktionen noch nie angewandt wurden.

Die Erfindung wird anhand der Figuren weiter erläutert:

Fig. 1 zeigt einen Längsschnitt durch einen rohrförmigen Durchflußreaktor mit zwei um 90° gegeneinander gedrehten Plattenstapeln, wobei der eine Stapel aus einfachen Platten, der andere aus Wärmeaustauscherplatten besteht.

Fig. 2a zeigt in perspektivischer Ansicht einen rohrförmigen Durchflußreaktor mit einem Stapel aus Wärmeaustauscherplatten.

Fig. 2b zeigt einen Querschnitt durch den Reaktor der Fig. 2a.

Fig. 3 zeigt einen Querschnitt durch eine Profil-Wärmeaustauscherplatte.

Fig. 4 zeigt ein Verfahrensschema zur Durchführung des erfundengemäßen Verfahrens am Beispiel einer Hydrier-

rung in Gegenwart eines Suspensionskatalysators.

Anhand des bevorzugten Durchflußreaktors der Fig. 1 wird der Aufbau verdeutlicht. Der rohrförmige Durchflußreaktor 1 umfaßt eine Reaktorwand 2, einen Einlaß 3 und Auslaß 4 und zwei im Reaktorrohr angeordnete Plattenstapel 5 und 6. Jeder Stapel weist mehrere (n) parallel angeordnete Platten 7/1 bis 7/n auf, die in Längsrichtung zum Rohr ausgerichtet sind und damit  $n+1$  spaltförmige, in Durchflußrichtung offene Reaktorkammern 8 bilden. Im Reaktor der Fig. 1 ist der Plattenstapel 5 gegenüber dem Plattenstapel 6 um 90° gedreht. Die Spaltbreite entspricht dem Plattenabstand  $s$  – in der Figur markiert zwischen den Platten 7/1 und 7/2. Die Platten sind über Distanzhülsen 9 miteinander verbunden und mittels Ankern 10 im Rohr fixiert. Die spaltförmigen Reaktorkammern 8 haben eine Breite  $b$ , welche im Plattenstapel 6 an der in Rohrmitte befindlichen Platte 7/m mit der Plattenbreite  $b$  angedeutet ist. Erfindungswesentliches Merkmal für rohrförmige Reaktoren als auch Reaktoren mit anderem Querschnitt ist, daß das Verhältnis der Breite  $b$  zur Spaltbreite  $s$  im Mittel größer als 3, bevorzugt größer als 5 und besonders bevorzugt größer als 10 ist. Zweckmäßigerweise liegt das Verhältnis bis im Bereich von 5 bis 100, insbesondere im Bereich von 10 bis 50, und die Spaltbreite im Bereich von 1 bis 100 mm, insbesondere im Bereich von 5 bis 50 mm, besonders bevorzugt 10 bis 50 mm.

Die Platten können zur Reaktorwand hin offen – wie am Plattenstapel 5 der Figur 2 erkennbar – oder geschlossen sein. Bei offener Bauweise – eine solche ist auch in Fig. 2 gut erkennbar – ist es möglich, einen Plattenstapel mit einheitlicher Platten- und damit Kammerbreite zu konstruieren, was einer besonders einfachen Bauart entspricht. Sofern die Platten an die Reaktorwand heranreichen, sind die Platten im Falle eines rohrförmigen Reaktors mit rundem Querschnitt zwangsläufig unterschiedlich breit, so daß hier das Verhältnis  $b/s$  für jenes der mittleren Plattenbreite Pro Spaltbreite steht.

Im Reaktor der Fig. 1 ist der Plattenstapel 5 aus einfachen Leiblechen ausgebildet, der Plattenstapel 6 dagegen aus Wärmeaustauscherplatten, denen ein Wärme- oder Kühlmedium durch die Stutzen 11 und 12 zu- beziehungsweise abgeführt wird. Zwecks Erhöhung der Turbulenz können die Platten auch profiliert sein. Ein Reaktor kann einen oder mehrere gleiche oder unterschiedlich ausgestaltete Plattenstapel aufweisen.

Fig. 2a zeigt in perspektivischer und teilweise geöffneter Ansicht einen Rohrreaktor 201 mit einem im Rohr 202 angeordneten Stapel 205 aus mehreren parallel angeordneten Wärmeaustauscherplatten 207 konstanter Breite. Den Platten wird durch die Stutzen 211 und 212 das Wärme- oder Kühlmedium zu- beziehungsweise abgeführt. Die parallele Anordnung der Platten wird hier mittels der Verbindungsstege oder -platten 209/1 und 209/2 gewährleistet, welche gleichzeitig die Funktion der Distanzhülsen und der Verteilung des Wärme-/Kühlmediums auf die einzelnen Platten einnehmen. In der Fig. 2b ist ein Querschnitt des in Fig. 2a gezeigten Reaktors 201 mit einem innenliegenden Stapel 205 eines Wärmeaustauschers dargestellt, wobei die Bezugssymbole jenen der Fig. 2a entsprechen. In Fig. 2b sind zusätzlich Plattenhalterungen (= Anker) 210 eingezeichnet. Das Reaktionsmedium, also das Gas-Flüssig-Gemisch, fließt durch die zwischen den Platten gebildeten Reaktorkammern 208 und die unterhalb und oberhalb des Stabes gebildeten Rohrsegmente 213 und gegebenenfalls auch durch die links und rechts des Stabes gebildeten Rohrsegmente 214.

Sowohl bei einfachen Leiblechen (gemäß Stapel 5 in Fig. 1) als auch Wärmeaustauscherplatten (gemäß Stapel 6 der

Fig. 1 sowie Fig. 2a und 2b) ist es möglich, die Platten profiliert zu gestalten, um die Ausbildung der Mikroturbulenz zu begünstigen. Eine solche profilierte Platte wird im Querschnitt in Fig. 3 dargestellt, wobei es sich um eine geschweißte Wärmeaustauscherplatte mit den Kanälen für das Wärme-/Kühlmedium handelt.

Obgleich rohrförmige erfindungsgemäße Reaktoren besonders bevorzugt sind, ist es auch möglich, blockförmige Reaktoren mit einem oder mehreren darin angeordneten Plattenstapeln mit dem erfindungsgemäßen Merkmal b/s zu konstruieren. Solche blockförmigen Reaktoren sind dann zweckmäßig, wenn die Platten aus geschweißten Wärmeaustauscherplatten bestehen.

Ein Verfahrensschema zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen, hier einer Hydrierung einer Arbeitslösung (AL) in Gegenwart eines Suspensionskatalysators, in einem Reaktor gemäß dieser Erfindung ist in Fig. 4 dargestellt. Das gezeigte Verfahrensschema kann auf beliebige Gas-Flüssig-Reaktionen angewandt werden, beispielsweise auf Hydrierungen unter Einsatz eines Wasserstoff enthaltenden Gases und eines im flüssigen Medium suspendierten Hydrierkatalysators und Oxidationsreaktionen mittels eines Sauerstoff enthaltenden Gases. Ein Anwendungsbeispiel richtet sich auf ein Verfahren zur Herstellung von Wasserstoffperoxid nach dem Anthrachinonverfahren, wobei in einer ersten Stufe ein in einer Arbeitslösung gelöster Anthrachinonreaktionsträger mit Wasserstoff katalytisch hydriert und in einer Folgestufe der hydrierte Reaktionsträger mit einem O<sub>2</sub>-enthaltenden Gas oxidiert und schließlich gebildetes Wasserstoffperoxid mit Wasser extrahiert wird und wobei die Hydrierstufe in Gegenwart eines Suspensionskatalysators und/oder die Oxidationsstufe unter Verwendung eines erfindungsgemäßen Reaktors durchgeführt werden. In der Hydrierstufe dieses Prozesses wird der in einem organischen Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch gelöste zu hydrierende Reaktionsträger – üblicherweise ein 2-Alkylanthrachinon oder Gemisch von 2-Alkylanthrachinonen und 2-Alkyl-tetrahydroanthrachinonen – in Gegenwart eines Suspensionskatalysators, meistens Palladium-Mohr, zumindest teilweise in die Hydrochinonform überführt. Diese erfindungsgemäße Hydrierstufe lässt sich unter Einsatz von im Stand der Technik bekannten Reaktionsträgern, Lösungsmitteln und Gemischen sowie Suspensionskatalysatoren anwenden – verwiesen wird hierzu auf das zuvor genannte Ullmann-Zitat, Vol. A13, 447-457 (1989).

Die Anlage gemäß Fig. 4 umfasst zwei hintereinandergeschaltete rohrförmige Durchflußreaktoren 401 mit erfindungsgemäßem Aufbau. Einzelne Plattenstapel 411, die geneinandergedreht sind, sind durch die abwechselnden grauen und weißen Segmente angedeutet. Wasserstoff wird über eine Leitung 402 in die Umlaufleitung 404, welche die Reaktionskomponenten in flüssiger, suspendierter oder gelöster Form und den Suspensionskatalysator enthält, eingespeist. Die eine zu hydrierende Komponente enthaltende Arbeitslösung AL wird über Leitung 403 in die Umlaufleitung 404 eingespeist. Das Gas-Flüssig-Reaktionsgemisch durchströmt die Reaktoren 401, worin der Wasserstoff zweckmäßigerweise vollständig umgesetzt wird. Das aus dem zweiten Reaktor austretende flüssige Medium gelangt in den Zwischenbehälter 405 und wird von dort mittels einer Pumpe 406 über Leitung 407 einem Filter 408 zugeführt. Im Filter 408, das unterschiedliche Filterelemente 409, beispielsweise Filterkerzen, enthält oder als Querstromfilter ausgebildet sein kann, wird ein Teilstrom 410 über die Filterelemente vom suspendierten Katalysator befreit. Der Teilstrom 410 (= Filtrat), wovon ein kleiner Teil nach Bedarf auch zum Rückspülen des Filters benutzt wird (dies wird durch den unterschiedlich langen Doppelpfeil angedeutet),

wird den Folge- oder Aufarbeitungsstufen zugeführt. Der am Filter vorbeiströmende Teil des umgesetzten Reaktionsgemisches, der den suspendierten Katalysator enthält, wird über Leitung 404 der Hydrierstufe zugeführt. Die dem abgezogenen Filtrat äquivalente Menge flüssiges Medium wird vor der Einspeisung von Wasserstoff über Leitung 403 der Leitung 404 zugeführt.

Wie aus dem erfindungsgemäßen Beispiel B und Vergleichsbeispiel VB hervorgeht, für das erfindungsgemäße 10 Verfahren zu einer großen Steigerung der Raum-Zeit-Ausbeute. Durch die überraschend hohe Wirksamkeit des erfindungsgemäßen Reaktors lässt sich nicht nur die Raum-Zeit-Ausbeute erheblich steigern, sondern gleichzeitig werden der apparative Aufwand und der Energiebedarf reduziert. 15 Während im vorbekannten Verfahren (gemäß US-Patent 4,428,923) viele mäanderförmig angeordnete Reaktionsrohre nötig waren, konnte bei Aufrechterhaltung der Anlagenleistung die Anzahl der Rohre auf weniger als ein Drittel abgesenkt werden, wenn diese Rohre mit erfindungsgemäßen Plattenstapeln ausgerüstet wurden. Ein weiterer Vorteil besteht darin, daß die bisher erforderliche hohe Umwälzrate und die dazu erforderliche Pumpenleistung entfallen. Während bisher nur ein Teilstrom dem Filter zugeführt, der Hauptstrom aber in die Hydrierstufe zurückgeführt wurde, kann nun die hydrierte Arbeitslösung im Hauptstrom vom Suspensionskatalysator befreit werden. Ein weiterer Vorteil ist, daß durch die Reduktion mit der Anzahl Reaktionsrohre eine entsprechend große Reduktion des Gesamtvolumens an Arbeitslösung und Suspensionskatalysator einhergeht. Die reduzierte Anzahl Reaktionsrohre führt ferner zu niedrigeren Anlagekosten durch eine geringere Menge Baustahl. Da nur jene Menge der hydrierten Arbeitslösung, die nicht als Filtrat abgezogen wird, umgewälzt wird, und zudem der Druckverlust zur Erzeugung der Mikroturbulenz in der Anlage geringer ist als im vorbekannten Verfahren, können die Umwälzpumpen kleiner dimensioniert und damit auch Energie werden.

Die in Fig. 2 dargestellte Kombination aus einem Plattenstapel aus einfachen Stapeln – bei Bedarf können die Platten auch profiliert sein – und einem Stapel aus Wärmeaustauscherplatten wird derart dimensioniert, wie es sich aus der Wärmebilanz der infragestehenden Reaktion als erforderlich erweist.

Die überraschende Wirkung des erfindungsgemäßen Reaktors wird anhand des nachfolgenden Beispiels und Vergleichsbeispiels verdeutlicht.

#### Beispiel (B) und Vergleichsbeispiel (VB)

In einer Vorrichtung gemäß Fig. 4, aber mit drei erfindungsgemäßen Durchflußreaktoren 401 (= 1½ Schläufen), wurde die Hydrierstufe des Anthrachinonprozesses zur Herstellung von Wasserstoffperoxid durchgeführt (B). In jedem der drei Rohre waren gemäß Fig. 1 je ein einfacher Plattenstapel und ein Stapel aus Wärmeaustauscherplatten enthalten; der Spaltabstand betrug 25 mm, die Breite der Kamern im Mittel 350 mm.

Zu Vergleichszwecken (VB) wurde das Verfahren in einer Vorrichtung gemäß Fig. 1 des US-Patents 4,428,923 durchgeführt, wobei der Reaktor 13 Rohre (= 6½ Schläufen) umfaßte und die in Fig. 1 des US-Patents gezeigte Umläufigung 4a in Betrieb war. Die Länge der Rohre und deren Rohrdurchmesser waren im Vergleichsbeispiel und erfindungsgemäßen Beispiel gleich.

Die Arbeitslösung in B und VB war identisch. Sie enthält als Reaktionsträger ein Gemisch aus 2-Ethyl- und 2-Amylanthrachinon und deren Tetrahydroanthrachinonen in einem Lösungsmittelgemisch aus einem Alkylaromatenge-

misch (Shellsol® und Triocetylphosphat. Der Gesamtgehalt an Chinonen betrug 175 g/l. Die Arbeitslösung enthielt als suspendierten Katalysator Palladium-Mohr in einer Menge von etwa 1 g Pd/l Arbeitslösung. Bei einer Temperatur von 60°C wurde H<sub>2</sub> eingespeist und der Reaktionsträger hydriert. 5

Im erfindungsgemäßen und im Vergleichsbeispiel wurden über das Filter (408 in Fig. 4 dieser Anmeldung und 6 in Fig. 1 des US-Patents) die gleiche Menge an Arbeitslösung ausgetragen und der Oxidationsstufe zugeführt, die einen 10 spezifischen Hydrochinonanteil enthält, um über die folgenden Prozeßstufen ca. 11 bis 13 g H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/l Arbeitslösung zu produzieren.

Durch die erfindungsgemäßen Plattenpakete in den Reaktorrohren konnte bei Aufrechterhaltung der Anlagenleistung nicht nur die Zahl der Reaktorrohre von 13 auf 3, sondern auch das Volumen der in den Reaktionsrohren enthaltenden Arbeitslösung einschließlich des Edelmetallkatalysators auf weniger als ein Viertel der im Vergleichsbeispiel erforderlichen Menge reduziert werden. Gleichzeitig war der Druckverlust in der Anlage und damit der Energieaufwand reduziert. Es wurde zudem festgestellt, daß das dritte Rohr im erfindungsgemäßen Beispiel überflüssig war, da die Umsetzung der Reaktionsträger mit dem Wasserstoff bereits im zweiten Rohr vollständig war. Wie der Vergleich zeigt, wird 20 die Raum-Zeit-Ausbeute der Hydrierstufe (= kg H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-Äquivalente pro m<sup>3</sup> Reaktorvolumen und Stunde) erheblich gesteigert. 25

Patentansprüche 30

1. Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig-Reaktionen, wobei eine flüssige Phase, welche eine Reaktionskomponente darstellt oder eine solche in gelöster, emulgiert oder suspendierter Form enthält, und eine ein umzusetzendes Gas enthaltende Gaspause in Gegenwart oder Abwesenheit eines Katalysators durch einen mehrere parallel nebeneinander angeordnete und für gleiche Strömungsrichtung konzipierte Reaktorkammern aufweisenden Durchflußreaktor geleitet werden, dadurch gekennzeichnet, daß man einen Durchflußreaktor mit mindestens drei spaltförmigen Reaktorkammern verwendet, wobei das Verhältnis der Breite b der Reaktorkammern zur Spaltbreite s im Mittel größer als 3 ist. 45
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man einen rohrförmigen Reaktor verwendet, dessen Kammern durch einen in einem Rohr angeordneten Plattenstapel mit einem Plattenabstand s (= Spaltbreite) gebildet werden, wobei die Kammern zur Reaktorwand hin offen oder geschlossen sein können, in Durchflußrichtung aber offen sind. 50
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man einen Reaktor verwendet, in welchem zumindest ein Teil der zwischen den Reaktorkammern befindlichen Wände als von einem Wärmeaustauschermedium durchströmte Wärmeaustauscherplatten ausgebildet sind, und die Temperatur in den Reaktorkammern mittels dieses Mediums regelt. 55
4. Verfahren nach Anspruch 2 und 3, dadurch gekennzeichnet, daß man einen Reaktor verwendet, welcher mindestens einen in Strömungsrichtung parallele Kammern bildenden Plattenstapel aus einfachen Platten und mindestens einen in Strömungsrichtung parallele Kammern bildenden Plattenstapel aus Wärmeaustauscherplatten aufweist, und die Temperatur mittels eines durch die Wärmeaustauscherplatten strömenden Mediums regelt. 60

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man einen Reaktor verwendet, dessen Kammern eine Spaltbreite s im Bereich von 1 bis 100 mm, insbesondere 10 bis 50 mm, und im Mittel ein Verhältnis b/s im Bereich von 5 bis 100, insbesondere 10 bis 50, aufweisen. 65

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man die flüssige Phase, welche eine gelöste Reaktionskomponente und zusätzlich einen homogenen oder Suspensionskatalysator enthält, im Gleichstrom durch den Reaktor leitet.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß man als Gas-Flüssig-Reaktion eine katalytische Hydrierung unter Einsatz eines Wasserstoff enthaltenden Gases oder eine Oxidation unter Einsatz eines Sauerstoff enthaltenden Gases durchführt.

8. Verfahren zur Herstellung von Wasserstoffperoxid nach dem Anthrachinonverfahren, wobei in einer ersten Stufe ein in einer Arbeitslösung gelöster Anthrachinonreaktionsträger mit Wasserstoff katalytisch hydriert und in einer Folgestufe der hydrierte Reaktionsträger mit einem O<sub>2</sub>-enthaltenden Gas oxidiert und schließlich gebildetes Wasserstoffperoxid mit Wasser extrahiert wird, dadurch gekennzeichnet, daß man die Hydrierstufe in Gegenwart eines Suspensions-Hydrierkatalysators und/oder die Oxidationsstufe unter Bedingungen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7 durchführt.

9. Durchflußreaktor zur Durchführung des Verfahrens gemäß einem der Ansprüche 1 bis 8, umfassend eine rohr- oder behälterförmige Reaktorwand, einen Einlaß zum Zuführen der Reaktionskomponenten, einen Auslaß zum Abführen des umgesetzten Reaktionsgemischs und mehrere parallel nebeneinander angeordnete und für gleiche Strömungsrichtung konzipierte Reaktorkammern, dadurch gekennzeichnet, daß er mindestens drei spaltförmige Reaktorkammern aufweist, deren Verhältnis Kammerbreite b zu Spaltbreite s im Mittel größer als 3 ist.

10. Durchflußreaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß er rohrförmig ist und die Kammern durch mindestens einen im Rohr angeordneten Plattenstapel mit einem Plattenabstand s (= Spaltbreite) ausgebildet sind, wobei die Kammern zur Reaktorwand hin offen oder geschlossen sein können, in Durchflußrichtung aber offen sind.

11. Durchflußreaktor nach Anspruch 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Spaltbreite s im Bereich von 1 bis 100 mm und das Verhältnis Kammerbreite b zu Spaltbreite s im Mittel im Bereich von 5 bis 100 liegt.

12. Durchflußreaktor nach einem der Ansprüche 9 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß er mindestens einen in Strömungsrichtung parallele Kammern bildenden Plattenstapel aus einfachen Platten und mindestens einen in Strömungsrichtung parallele Kammern bildenden Plattenstapel aus Wärmeaustauscherplatten aufweist.

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

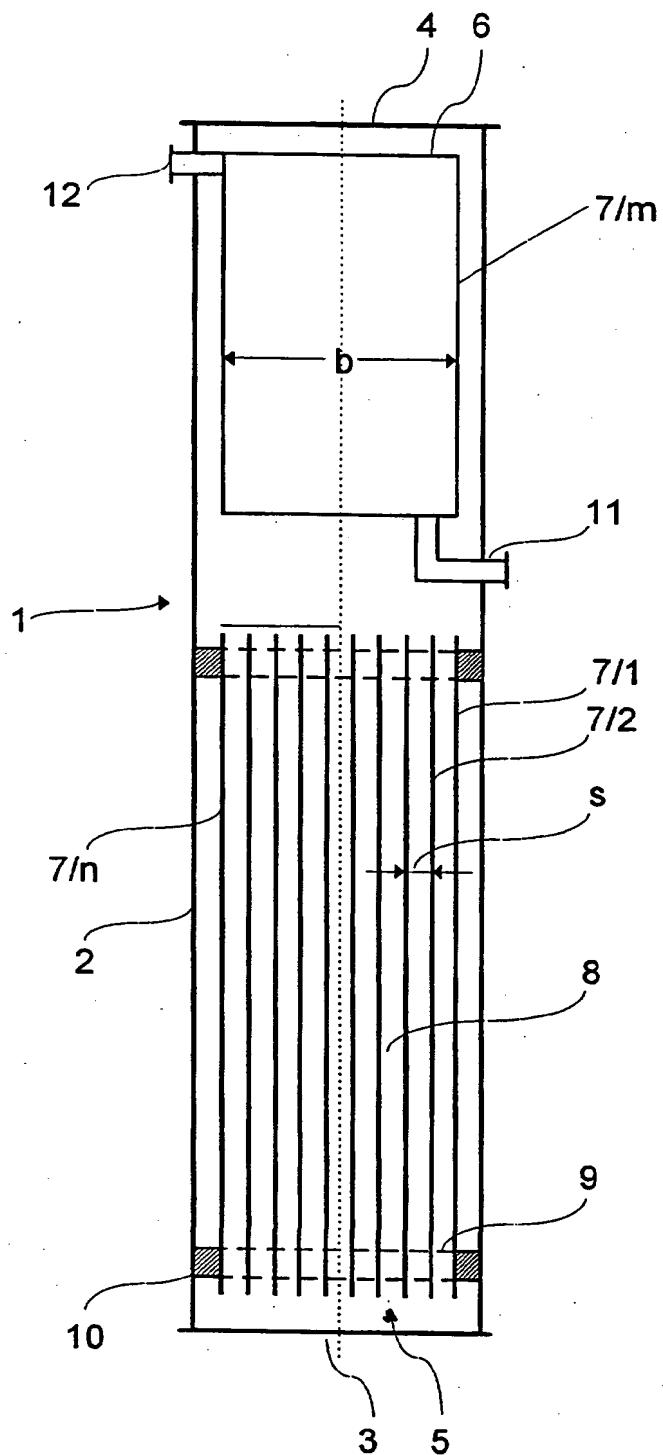
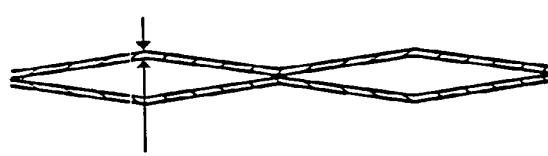
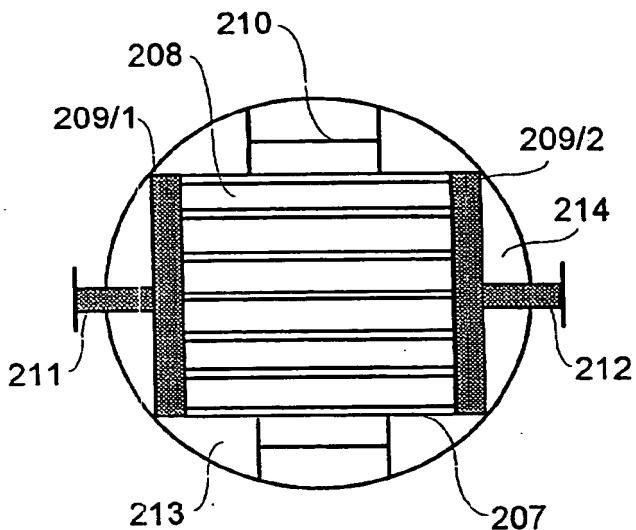
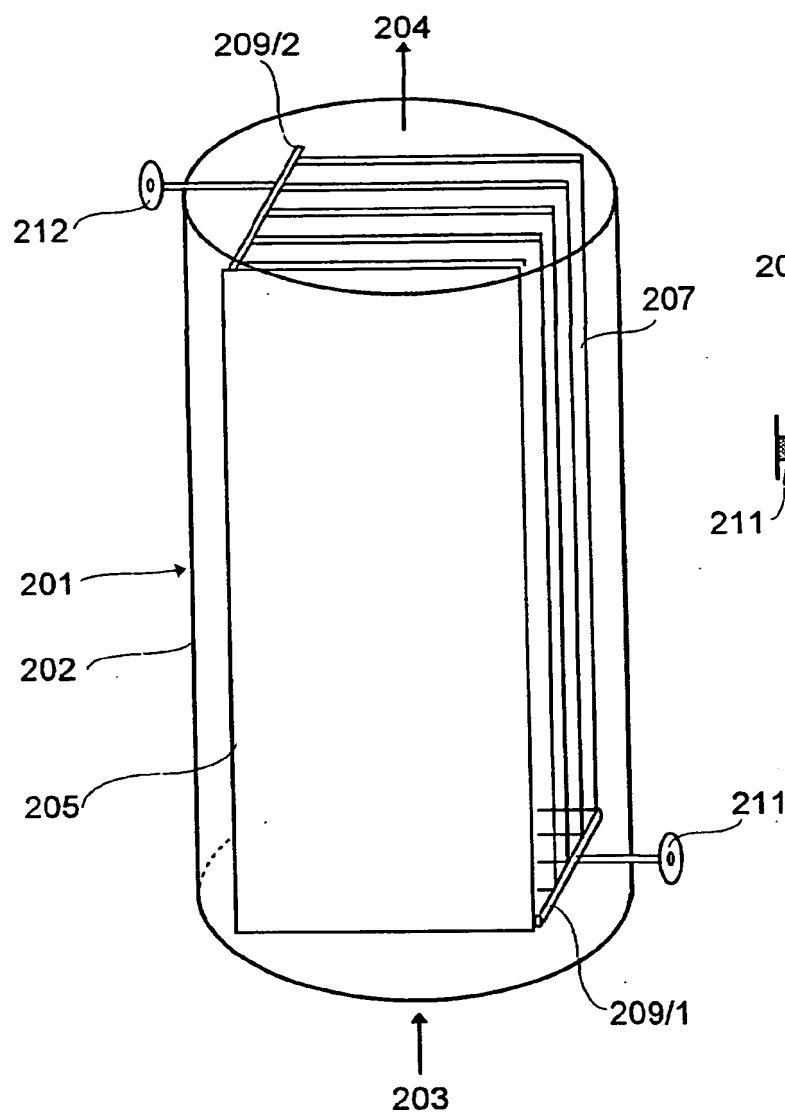


Fig. 1



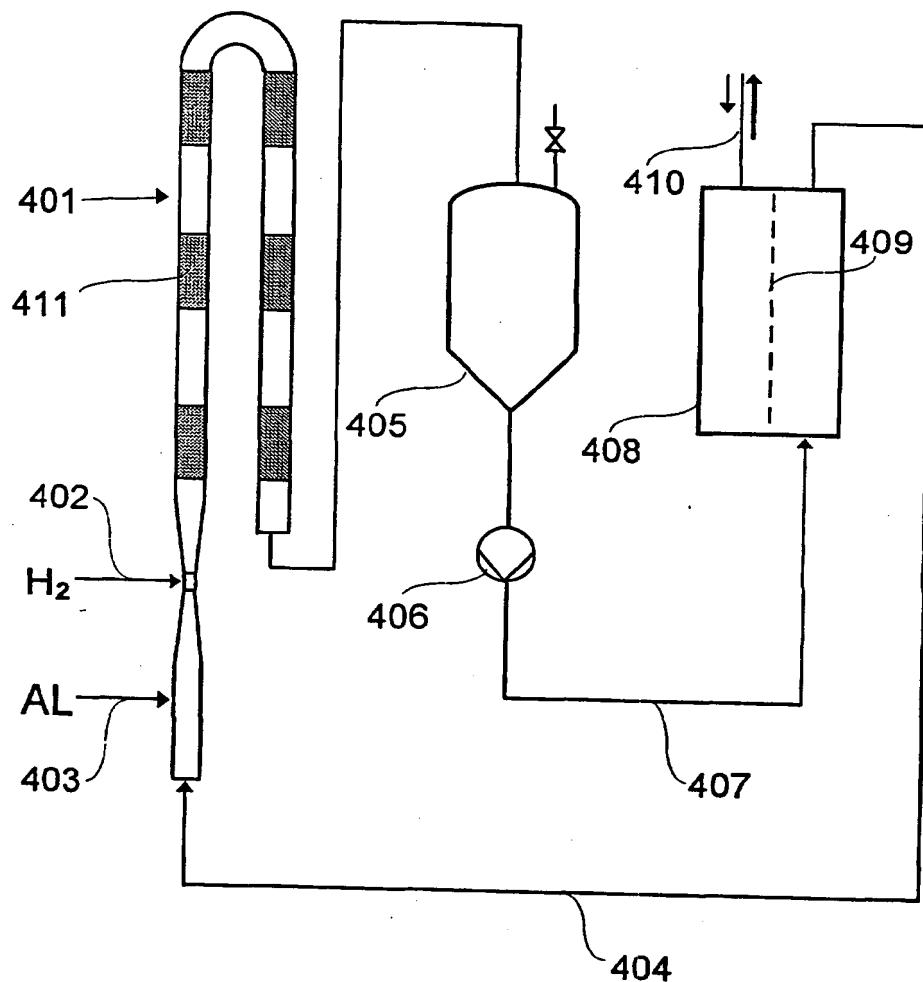


Fig. 4